

超高速テラヘルツ時間領域分光装置のための研究開発

Research and Development for Ultrafast Terahertz Time-Domain Spectroscopy System

谷 正彦¹, 山本 晃司¹, 古屋 岳¹, ケ・クリストファー¹, 宮丸 文章²,
西澤 誠治³

Masahiko Tani¹, Kohji Yamamoto¹, Takashi Furuya¹, Fumiaki Miyamaru², and Seizi Nishizawa³

¹ 福井大学遠赤外領域開発研究センター

*¹Research Center for Development of Far-Infrared Region, University of Fukui
Fukui 910-8507, Japan*

² 信州大学理学部

*² Faculty of Science, Shinshu University
3-1-1 Asahi, Matsumoto 390-8621, Japan*

³ (株)先端赤外

*³ Advanced Infrared Spectroscopy Co., Ltd.
3-17-16 Sen-nin-cho, Hachioji 193-0835, Japan*

Abstract

We report on our research and development aiming for realization of an ultrafast terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) system. To achieve the goal, we have proposed a new asynchronous optical sampling method, in which an optical pulse train with its interval incremented (or decremented) continuously and its one-cycle delayed replica are used as the pump and probe pulses. We demonstrated a 3-msec single-scan measurement of a THz waveform with a 312-ps time window. The relatively large timing-jitter (~10ps) of the laser system limited the detection bandwidth below 100 GHz. In addition, we also tried to improve the efficiency of photoconductive (PC) antennas, which are used as the emitter and detector in the THz-TDS system, by optimizing the antenna design. We found that the emission efficiency of the dipole-type PC antennas can be significantly improved by using a relatively long antenna length (~70 μm) without much sacrificing the emission spectral bandwidth.

1. はじめに

超高速テラヘルツ時間領域分光装置の実現には、テラヘルツ時間領域波形の観測を短時間で行うための高速サンプリング法、およびテラヘルツ波を高効率で発生・検出することができる素子の開発が必要である。我々はこの目的のため、高速サンプリング法として「差周波同期サンプリング法」の開発と、テラヘルツ波の発生・検出素子として用いられる光伝導アンテナの形状最適化による効率改善をそれぞれ試みたので、これを報告する。

フェムト秒レーザーを励起光源とし、光伝導アンテナ等をテラヘルツ波の発生・検出用いてテラヘルツ波の振幅波形を時間領域検出するテラヘルツ時間領域分光法 (Terahertz Time-Domain Spectroscopy, 以下 THz-TDS と略記) は品質管理や危険物探知などへの応用が期待されている。しかしながら、同手法では一般的に機械式遅延ステージを使用したポンプ・プローブ方式が用いられるため、1 波形の取得に通常数分程度を要する。比較的長い測定時間を要することが、短時間測定を必要とする産業利用や、イメージング応用への妨げとなっている。近年、非同期光サンプリング (ASynchronous OPTical Sampling, 以下 ASOPS と略記) により、機械式遅延時間掃引に比べ、3 桁程度の測定時間の短縮が報告され [1, 2], THz-TDS の産業利用への期待が高まっている。ASOPS は高速サンプリング法として優れた手法であるが、以下のような問題点がある。

(i) 測定時間窓 (遅延時間の掃引時間幅) は励起レーザーの繰返し周期に固定される。したがって、通常用いられるモード同期型のフェムト秒レーザーでは 10ns 前後の測定時間窓 (その逆数が測定の周波数分解上限になる) となるが、高周波数分解を要しない応用では、データ取得の無駄時間が多くなる。

(ii) 2 台の繰返し周波数がわずかに異なるレーザーが必要で、その繰返し周波数を精密に制御、安定化する必要があるため、必然的にシステムが高価かつ複雑になる。

我々は ASOPS の問題点を改善し、従来の ASOPS よりも測定時間を 1 桁以上短縮することを目的として、新たなサンプリング方式である「差周波同期サンプリング」を提案し、その原理実証実験を行った。312 ps の時間波形を 3 msec で取得可能なことを実証することができた。

一方、測定時間の短縮に伴う信号対雑音比 (SNR) の低下を補うため、テラヘルツ波の発生および検出効率を改善する必要がある。我々はダイポール型の光伝導アンテナのアンテナ形状を最適化することにより、テラヘルツ波の発生効率を改善することを試みた。ダイポール型の光伝導アンテナのアンテナ長、光伝導ギャップの形状を変化させた素子を試作し、評価した。アンテナ長を長くすることで、テラヘルツ放射強度は顕著に増大した。アンテナ長を長くすることで放射スペクトルが増大するとともに、全体的に低周波シフトするが、アンテナ長が 70 μm 以下であれば低周波シフトはそれほど顕著ではないことが分かった。したがって、従来 20 m 程度であったアンテナ長を 70 μm にすることがダイポール型の光伝導アンテナの効率改善に有効であるといえる。

2. 差周波同期サンプリングの原理

差周波同期サンプリングでは 1 台の繰返し周波数可変レーザーをポンプ及びプローブ光源とし、ポンプ光またはプローブ光の光路にレーザーの基準繰返し周波数の 1 周期分に相当する時間遅延を与える。レーザーの繰返し周波数を連続的に変化させることで、ポンプ光またはプローブ光の時間掃印が可能となる。差周波同期サンプリングのタイミングチャートを図 1 に示す。図 1 ではレーザーの光パルス列の周期は、初期周期 T_0 から ΔT ずつ減少する。1 周期遅れのパルス列と元のパルス列を重ねると（一方がポンプ光パルス、もう一方がプローブ光としてテラヘルツ波の発生とサンプリングに用いられる）、2 つの光パルスの相対遅延時間 τ はパルスごとに ΔT ずつずれていく ($\tau=0, \Delta T, 2\Delta T, \dots$)。このようにして、繰返し周期（あるいは繰返し周波数）は変化するが、ASOPS と同様に機械的な走査なしに、遅延時間 τ を自働掃引できる。また繰返し周期の制御により、測定時間窓は任意に設定できるので、必要な周波数分解に合わせて設定できる。例えば 100MHz のモード同期レーザーを用いた ASOPS では、繰返し周期は 10ns であり、測定時間窓も 10ns 固定となる（周波数分解は繰返し周波数と同じ 100MHz）。しかし必要な測定時間窓が、波形中心付近の 100ps であるなら、9.9ns は無駄な計測時間となる。一方、差周波同期サンプリングではレーザーの繰返し周波数が 100MHz であっても、測定時間窓を 100ps にできるので、無駄時間がなく、上の例では ASOPS に比べて測定時間を 1/100 に短縮でき、また無駄時間がなくなった分、SNR は 10 倍改善される。

3. 差周波同期サンプリング実験

図 2 に差周波同期サンプリング実験の装置構成図を示す。励起光源には繰返し周波数可変のファイバーレーザー（中心波長 1555 nm, 最大平均出力 450 mW, 基準繰返し周波数 40 MHz）を使用した。このファイバーレーザーは利得スイッチ型の半導体レーザーを内蔵し、半導体レーザーからのパルス光（波長 1.55 μ m）をファイバー増幅器で

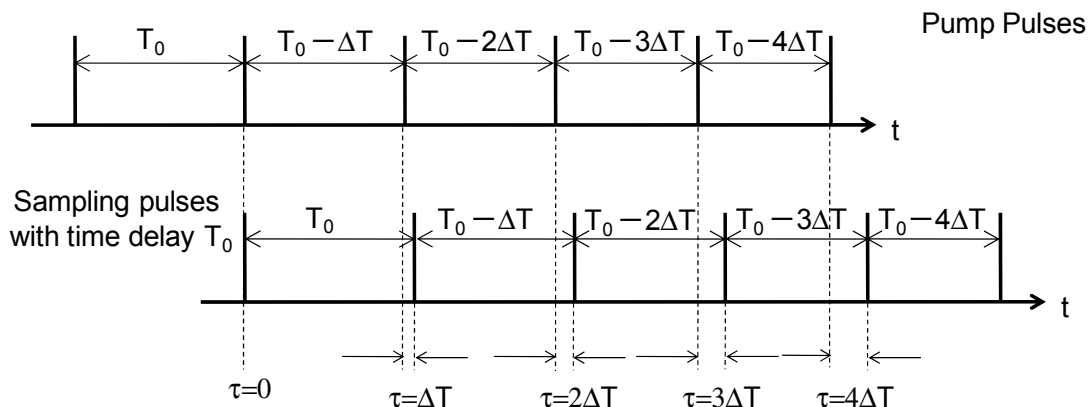


図 1. 差周波同期サンプリングのタイミングチャート

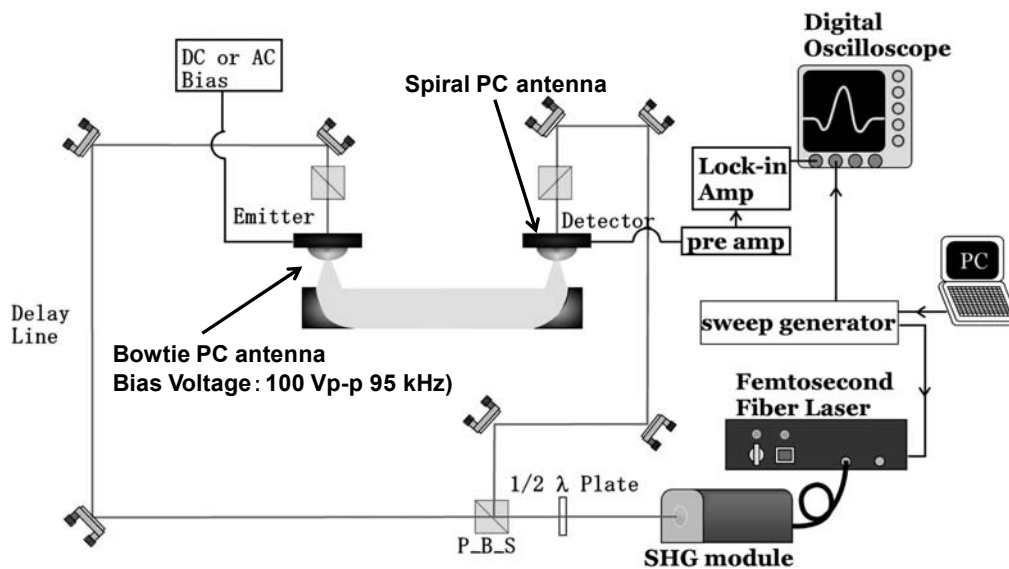


図 2．差周波同期サンプリングの実験装置構成図

増幅し、分散補償ファイバーでパルス圧縮することでフェムト秒レーザー光を発生させている。外部からの電気信号をトリガーとしてレーザー発振させることが可能であり、外部トリガーに Sweep Generator を使用して繰返し周波数を連続的に変化させた。Sweep Generator は基準周波数（35~45MHz の範囲で設定可能）を中心に最大 2MHz の範囲の周波数を Sweep(走査)可能である。また温度制御付の水晶発振器を周波数標準に用いており、その周波数安定度は約 10^{-8} である。ファイバーレーザーからの波長 1555 nm の出力は Second Harmonic Generator (SHG)モジュールで 2 倍波に波長変換される（中心波長 778 nm）。最終的なレーザー出力(SHG 光)は平均 35 mW でそのパルス幅は約 130 fs (FWHM) である。

1/2 波長板と偏光プリズムで構成されたビームスプリッターでレーザー光をポンプ光とプローブ光に分け、ポンプ光の光路長をプローブ光に対し 7.5 m (25ns の時間遅延に相当) 長く取ることにより、40 MHz の繰返し周期に相当する時間遅延を与えた。本実験ではレーザーの繰返し周波数を 39.72 MHz から 40.22 MHz まで繰返し周期 3 msec (繰返し 333Hz) で変化させた。この場合の周波数掃引幅は測定時間窓 312 ps に相当し、3 msec の掃引時間は約 13 万点のサンプリング点数に相当する。エミッターにはボウタイ型光伝導アンテナを使用し、100 Vp-p, 100 kHz のバイアス変調を与えた。スパイラル型光伝導アンテナで THz 波を受信し高速応答可能な電荷アンプで増幅後、高速ロックインアンプを用いてロックイン検出を行なった。波形信号はデジタルスコープで記録した。

3. 差周波同期サンプリングの結果と考察

差周波同期サンプリングにより得られたテラヘルツ波の時間領域信号波形を図 3(a)

に、そのフーリエ変換パワースペクトルを図 3(b)に示す。反射によるベースラインの歪みはあるものの 0 ~ 50 ps 付近に波形ピークを得た。遅延時間幅は 312 ps で、その走査に要した時間は 3ms である (走査レート 333Hz)。フーリエ変換パワースペクトルは約 10GHz 付近でピークをとり、100GHz 程度でノイズレベルと同じになる。スペクトルピークとノイズレベルの比で定義されるダイナミックレンジは約 10^5 である。またスペクトルピークから 20dB のスペクトル強度減衰で定義されるスペクトル帯域は約 40GHz である。

比較のために、自動ステージを用いた機械式走査により測定した時間波形とそのフーリエ変換パワースペクトルを図 4 に示す。差周波同期サンプリングによる場合よりも鋭い波形ピークが観測されており、そのスペクトル帯域も広い。この場合の測定時間は約 3 分程度で、スペクトルピークとノイズレベルの比で定義されるダイナミックレンジは

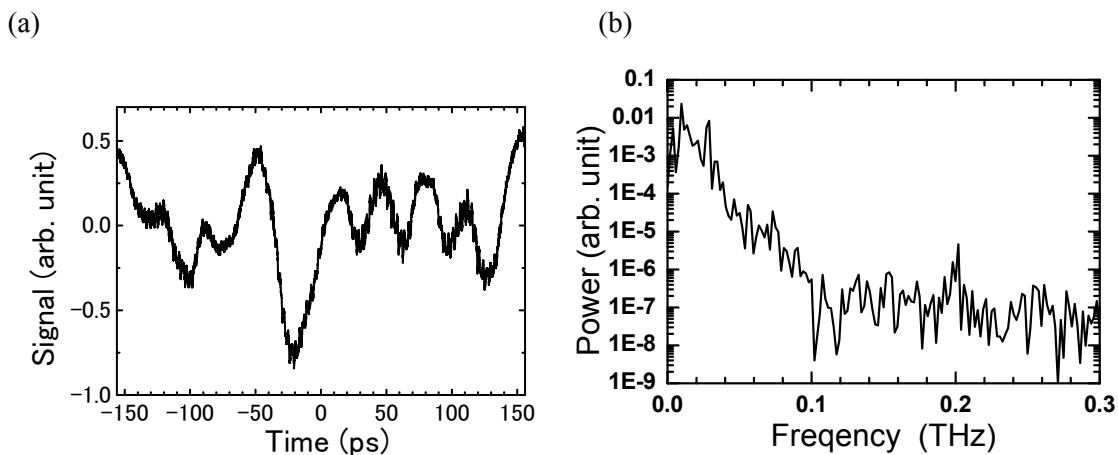


図 3. 差周波同期アンプリングにより取得した(a)THz 時間波形と(b)そのフーリエ変換パワースペクトル。測定時間 3ms, 測定時間窓 312 ps。

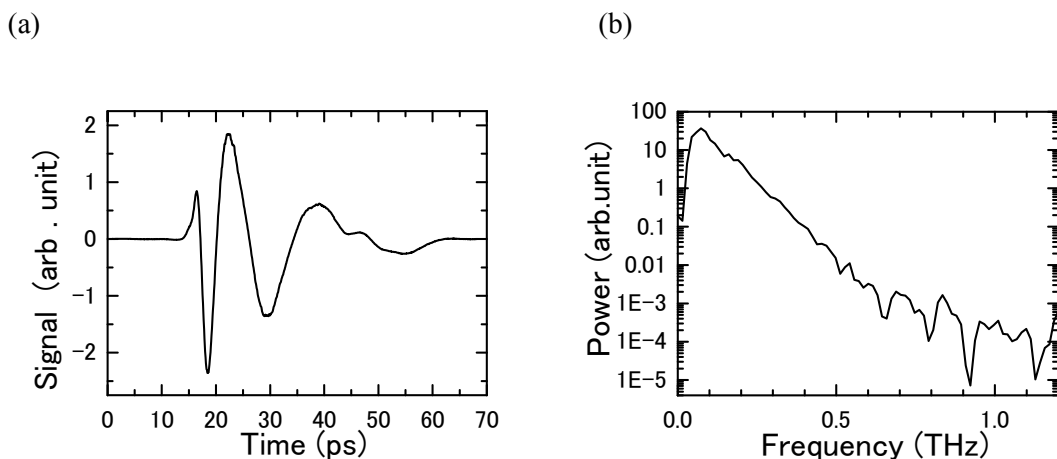


図 4. 自動ステージによる機械式時間遅延走査により取得した(a)THz 時間波形と(b)そのフーリエ変換パワースペクトル。

約 10^{-6} である。20 dB のスペクトル強度減衰で定義されるスペクトル帯域は約 300 GHz である。この結果から分かることは、差周波同期サンプリングでは時間分解が悪くなり、その結果、検出スペクトル帯域も大きく制限されていることである。時間分解の劣化は用いたレーザーのタイミングジッターに起因すると思われる。実際、ポンプ光とプローブ光の相互相関測定によるタイミングジッターは 10 ps 弱であった。差周波同期サンプリングの時間分解を改善し、測定可能なスペクトル帯域を拡げるためには、レーザー光源のタイミングジッターを低減する必要がある。一方、測定時間が自動ステージを用いた場合に比べて約 $1/60,000 (=3\text{ms}/180\text{s})$ になることから予想されるダイナミックレンジの低下は約 2 桁であるが、実際には 1 桁程度しか低下していない。自動ステージを用いた場合の測定系（ロックインアンプの時定数、パソコンへの取り込みインターフェースなど）が最適化されていなかったことと、比較的長周期の信号変動のため、遅い時間遅延走査ではノイズレベルが速い時間遅延走査の場合よりも上がるのではないかと推定される。

4. アンテナ形状最適化による光伝導アンテナの効率改善

差周波同期サンプリングにより高速の波形測定が可能になったが、測定時間が短いため、現在用いている光伝導アンテナのテラヘルツ波放射効率と検出感度では十分な SNR を得ることが困難である。そこで、我々は THz-TDS によく用いられているダイポール型の光伝導アンテナのアンテナ形状を最適化することにより、テラヘルツ波の発生効率を改善することを試みた。

図 5(a) にダイポール型光伝導アンテナの中央部分を拡大した図を示す。アンテナ形状のパラメーターとしてはアンテナ長 L 、アンテナ幅 W 、光伝導ギャップ幅 G などがあり、これらのパラメーターを変化させたダイポール型光伝導アンテナを低温成長 GaAs (LT-GaAs: 浜松ホトニクス社製、キャリア寿命 0.5 ps 以下、キャリア移動度 $150\text{V}/\text{cm}/\text{sec}$ 以上、暗抵抗 $3\text{ M}\Omega/5\text{ }\mu\text{m}$ 以上) 基板上に作製し、一般的な THz-TDS の放射素子として用いてそのテラヘルツ波放射スペクトルを測定した。用いたレーザーは Coherent 社 Chameleon (中心波長 800 nm, 繰り返し 80 MHz, パルス幅 120 fs) で検出素子として $L=70\text{ }\mu\text{m}$, $W=10\text{ }\mu\text{m}$, $G=5\text{ }\mu\text{m}$ のダイポール型光伝導アンテナを使用した。Pump, Probe パワーはともに 10 mW で、放射に用いた光伝導アンテナのバイアス電圧は約 100 kHz で変調し、ロックインアンプで信号を検出した (ロックイン時定数 1 ms)。波形走査速度は 5 秒/scan で 10 回積算した時間領域波形を記録した。

詳細は割愛するがアンテナ幅 W 、光伝導ギャップ幅 G に対する顕著な依存性は見られなかった。一方、アンテナ長 L については放射スペクトル形状および放射強度に大きな依存性が確認された。図 5(b) に異なるアンテナ長 $L (=20, 70, 100, 150, 200\text{ }\mu\text{m})$ を持つ光伝導アンテナからの放射パワースペクトルを示す。アンテナ長 L が大きくなるにつれ、スペクトル強度が顕著に増大しているのが分かる。またアンテナ長 L が大きくなるにつ

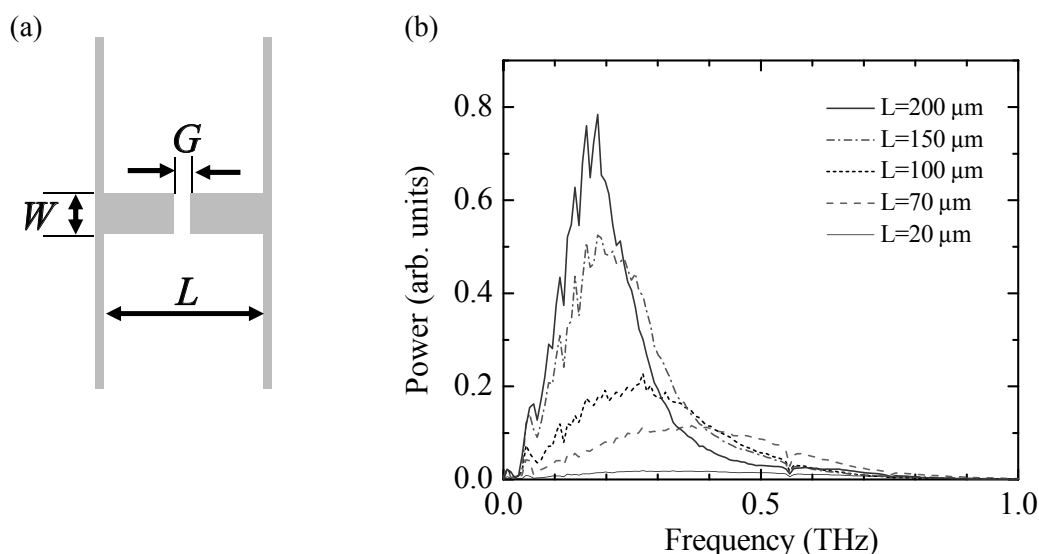


図 5. (a)ダイポール型光伝導アンテナの中央部分を拡大した図。(b)異なるアンテナ長 L ($=20, 70, 100, 150, 200 \mu\text{m}$) を持つ光伝導アンテナからの放射パワースペクトル。

れ、スペクトル強度が最大となる周波数は低周波数側にシフトしていることが分かる。したがって広帯域な放射スペクトルを得るためにはアンテナ長 L をあまり大きくすることできない。しかし、アンテナ長 $L=70 \mu\text{m}$ では従来使用していた $L=20 \mu\text{m}$ の場合に比べてピークスペクトル強度で約 5 倍増大しているが、スペクトルの低周波数シフトはそれほど大きくない。従ってアンテナ長 $L=70 \mu\text{m}$ 以内の範囲のものであれば、スペクトル帯域をあまり犠牲にせず、放射効率を改善することが可能であることが分かる。

なお時間領域差分 (Finite-Difference Time-Domain, FDTD) 法を用いたシミュレーション計算でも同様なアンテナ長 L に対する放射スペクトルの依存性を確認した (詳細は参考文献[3]を参照)。さらにこのシミュレーション計算により、放射スペクトルは励起レーザーのパルス幅にも依存し、目的とする帯域における放射効率を最大化するためには、レーザーのパルス幅に応じた最適なアンテナ長 L を選ぶ必要があることが分かった。

放射効率についての議論は検出効率にもほぼそのまま当てはまる。したがってアンテナ長 L を最適化することによりダイポール型光伝導アンテナの検出効率も同様に改善することができる。

5. まとめ

差周波同期サンプリングという非機械式の高速サンプリング法を実証し、アンテナ長の最適化によりダイポール型光伝導アンテナの放射効率および検出効率を改善できることを示すことができた。差周波同期サンプリングにおける時間分解能の改善ために、

レーザーのタイミングジッターを 1ps 以下に抑えることが今後の重要な技術課題である。

謝辞

本報告における研究開発は独立行政法人科学技術振興機構による先端計測分析技術・機器開発事業，開発課題名「超高速テラヘルツ波品質管理センサーの開発」の助成を受けて実施されたものである。関係諸機関，関係諸氏に感謝する。

参考文献

- [1] T. Yasui, E. Saneyoshi, and T. Araki: Appl. Phys. Lett., Vol.87, 061101 (2005).
- [2] A. Bartels, R. Cerna, C. Kistner, T. Thoma, F. Hudert, C. Janke, and T. Dekorsy: Rev. Sci. Instrum., Vol.78, 035107 (2007).
- [3] F. Miyamaru, Yu Saito, K. Yamamoto, T. Furuya, S. Nishizawa, and M. Tani: “Dependence of emission of terahertz radiation on geometrical parameters of dipole photoconductive antennas,” Appl. Phys. Lett. Vol.96, 211104 (2010).